

**Abstract of JP2001122805**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for control in order to efficiently and stably operate a vapor-phase oxidation reactional system for a hydrocarbon having a recycling process for recovering the unreacted hydrocarbon and recycling the recovered hydrocarbon to a reactor.

**SOLUTION:** This method for control of a reactional system comprises a reactor fed with a raw material containing the hydrocarbon, oxygen and air or an inert gas, a separator connected to the reactor and a recycling loop for returning an effluent from the separator to the reactor. Furthermore, the method is characterized as controlling the total flow rate at an inlet for the reactor or the discharged flow rate from the reactor or separator by changing the flow rate of the air or inert gas fed to the vapor-phase oxidation reactional system and further controlling the ratio of the oxygen concentration to the hydrocarbon concentration in the effluent from the reactor or separator by changing the flow rate of the oxygen fed to the vapor-phase oxidation reactional system.

(19) 日本国特許庁 (J P)

# 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-122805

(P 2 0 0 1 - 1 2 2 8 0 5 A)

(43) 公開日 平成13年5月8日 (2001.5.8)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-コ-ド (参考)
C07B 61/00	300	C07B 61/00	C
B01J 8/00		B01J 8/00	C
C07B 33/00		C07B 33/00	
C07C 17/15		C07C 17/15	

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全6頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-230233 (P 2000-230233)  
(22) 出願日 平成12年7月31日 (2000.7.31)  
(31) 優先権主張番号 特願平11-228951  
(32) 優先日 平成11年8月13日 (1999.8.13)  
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005968  
三菱化学株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目5番2号  
(72) 発明者 ランディ エム ミラー  
アメリカ合衆国カリフォルニア州 サウザ  
ンド オークス チューペロウッド コー  
ト 855  
(72) 発明者 沢木 至  
岡山県倉敷市潮通三丁目10番地 三菱化学  
株式会社水島事業所内  
(74) 代理人 100070600  
弁理士 横倉 康男

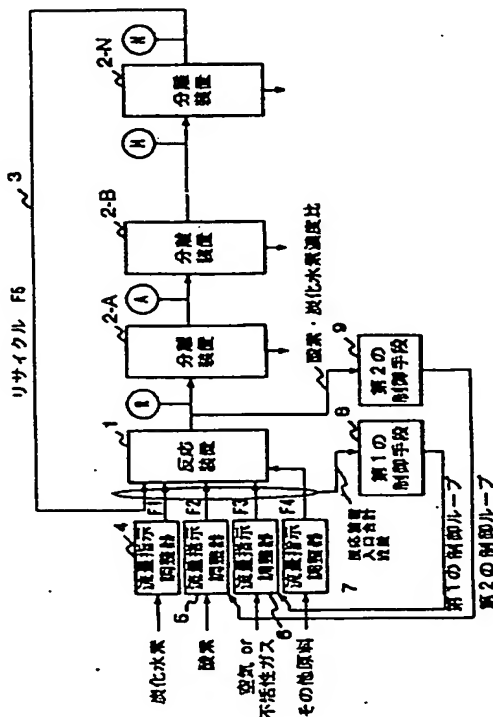
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 気相酸化反応システムの制御方法及び制御装置

## (57) 【要約】

【課題】 未反応の炭化水素を回収して反応装置に循環させるリサイクルプロセスを有する炭化水素の気相酸化反応システムを、効率かつ安定に運転するための制御方法を提供する。

【解決手段】 炭化水素、酸素及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される反応装置と該反応装置に結合された分離装置と、分離装置からの排出流を反応装置に戻すリサイクルループとを備えた反応システムの制御方法であって、反応装置入口の合計流量か反応装置あるいは分離装置からの排出流量を、気相酸化反応システムへ供給する空気又は不活性ガスの流量を変更することにより制御し、さらに該反応装置あるいは分離装置からの排出流中の酸素濃度と炭化水素濃度の比率を、気相酸化反応システムへ供給する酸素の流量を変更することにより制御することを特徴とする制御方法。



【0007】図1に、本発明を適用した気相酸化反応システムの概要構成を示す。以下、図1に基づき本発明の詳細を説明する。図1の気相酸化反応システムは、少なくとも一つの反応装置1と、一つ又はそれ以上の分離装置2-A~2-Nと、リサイクルループ3とを有する。反応装置1に供給される炭化水素、酸素、空気あるいは不活性ガス及びその他の気相原料の新規供給分は、それぞれ流量指示調整器4、5、6、7で流量F1、F2、F3、F4に調整される。また図示省略されているが、反応装置1には触媒を存在させている。

【0008】反応装置1からの反応生成物や副生成物、あるいは不要成分は、分離装置2-A~2-Nのそれぞれから任意に取り出されあるいは除去される。R点は反応装置1からの排出流、A点は第一番目の分離装置2-Aからの排出流、…、N点は第N番目の分離装置2-Nからの排出流を示す。最終又は第N番目の分離装置2-Nからの排出流は、供給流の一部としてリサイクルループ3を介して反応装置1にリサイクルされる。このリサイクル流量はF5で表わされる。

【0009】本発明のシステム制御方法によれば、図1にそれぞれ第1の制御手段8と第2の制御手段9を介するように示されている第1と第2の少なくとも2つの制御ループが設けられる。第1と第2の制御手段8、9としては、どのようなタイプのPID (proportional-integral-derivative) 制御装置でも、またどのような種類のフィードバック型制御装置でも或いはどのような種類のフィードフォワード型制御装置でもよい。

【0010】まず制御手段8を用いる第1の制御では、反応装置1の入口の合計流量 ( $F1 + F2 + F3 + F4 + F5$ ) 又はR点~N点のいずれか一つ以上の排出流量を検出して、その値が所望の設定値に等しくなるように反応装置1へ供給する空気又は不活性ガスの流量F3を変更する。反応装置入口の合計流量とR点~N点のいずれか一つ以上の排出流量との双方で制御する場合は、各検出値の加重平均その他の適切な評価関数を作成して使用する。

【0011】第1の制御手段8を用いて反応装置入口の合計流量を制御する場合には、反応装置1へ供給される全てのガスの流量をそれぞれ通常用いられる各種の流量計で連続的に測定し、それらの合計流量 ( $F1 + F2 + F3 + F4 + F5$ ) が所望値に保たれるように、反応装置1への空気又は不活性ガスの供給流量F3を通常用いられる流量調節弁等の手段により制御する。図示されている流量指示調整器4~7は、それぞれ流量測定及び流量調節の各手段を備えている。図1に示されている例では、反応装置入口の合計流量が測定される。第1の制御手段8は、反応装置入口の合計流量が設定値に対して増大するときは流量指示調整器6を制御して空気又は不活性ガスの流量F3を低下させ、反応装置入口の合計流量

が所望値に保たれるようにする。

【0012】また図1の場合とは異なり、第1の制御手段8がR点~N点のいずれか、例えばM点の排出流量を制御する場合には、M点の流量が所望値に保たれるように流量指示調整器6を制御して空気又は不活性ガスの流量F3を変更する。例えば、M点の流量が設定値に対して減少するときは、空気又は不活性ガスの流量F3を増加させる方向に制御して、M点の流量を所望値に保つ。

【0013】次に制御手段9を用いる第2の制御では、第2の制御手段9が、R点~N点のいずれか一つ以上の排出流中の酸素濃度と炭化水素の濃度の比率を検出して流量指示調整器5を制御し、検出される酸素濃度と炭化水素濃度の比率が所望の設定値に等しくなるように反応装置1へ供給する酸素の流量F2を変更する。ここでR点~N点の複数点について排出流中の酸素濃度と炭化水素の濃度の比率を検出し制御する場合は、各検出値の加重平均その他の適切な評価関数を作成して使用する。反応システムへの各供給ガス流量、反応装置もしくは分離装置からの排出ガス流量、或いはリサイクル流量は、差圧式流量計、渦式流量計、コリオリ式流量計、面積式流量計等の通常用いられているガス流量測定手段により測定される。反応装置あるいは分離装置からの排出流中の酸素濃度は、各種オンライン酸素計や酸素濃度を測定出来る分析計等の通常用いられている酸素濃度測定手段により測定され、炭化水素濃度も赤外分析計や質量分析計等の各種オンライン分析計により測定される。なおこの場合、ガスクロマトグラフのような非連続の分析手段を用いるよりは、連続的に濃度を測定できる手段を用いることが望ましい。分離装置は、反応装置又は分離装置からの反応生成物、副生成物あるいは不要成分を分離するものであってもよいし、また、反応装置又は分離装置からの排出流を2つ以上の流れに分離するものであってもよい。分離装置としては、吸収分離装置、凝縮分離装置、吸着分離装置、蒸留分離装置等、通常公知の分離装置を用いることができる。

【0014】図1に示されている第2の制御ループの例では、反応装置1からの排出流中の酸素濃度と炭化水素濃度の比率が測定される。第2の制御手段9は、測定された酸素濃度と炭化水素濃度の比率が所望値となるように、流量指示調整器5により反応装置1に供給する酸素の流量F2を変更させる。例えば、反応装置1からの排出流中の酸素濃度と炭化水素濃度の比率が減少したときには、流量指示調整器5を制御して反応装置1への酸素供給流量F2を増加させ反応装置1からの排出流中の酸素濃度と炭化水素濃度の比が所望値に保たれるようにする。炭化水素、酸素、空気又は不活性ガス等を含む原料ガスは、反応装置又は分離装置へ直接供給されてもよいし、分離装置への供給流あるいは排出流に供給されてもよい。

【0015】本発明は、触媒の存在下で、炭化水素及び

と、一つ又はそれ以上の分離装置2-A~2-Nと、リサイクルループ3からなり、反応装置1には、炭化水素、酸素、空気あるいは不活性ガス、及びその他の気相原料の新規供給分が供給される。反応装置1からの反応生成物、副生成物、及び不要成分は、分離装置によって取り出され、あるいは除去される。R点には反応装置1からの排出流があり、A点には分離装置2-Aからの排出流があり、以下同様にしてN点には分離装置2-Nからの排出流がある。最終のN点の排出流は、供給流の一部として反応装置1にリサイクルされる。第1の制御手段8と第2の制御手段9は、それぞれ制御変数(CV)と操作変数(MV)を有している。

【0023】第1の制御手段8は、制御変数(CV)に、反応装置入口の合計流量又はR点~N点のいずれか1つ以上の点の排出流量をとることができる。流量は、質量流量、モル流量、体積流量等通常用いられる流量であればよい。図示の例では、第1の制御手段8は、反応装置1からの排出流量をR点で取り込み、対応する予め設定されている排出流量の目標値と比較して偏差を検出し、検出した偏差量に応じて空気又は不活性ガスの供給流量に対する操作値を演算し、操作変数(MV)として流量指示調整器6へフィードバックする。流量指示調整器6は、入力された操作変数(MV)の値に基づいて、反応装置1へ供給する空気又は不活性ガスの流量F3を調整する。

【0024】第2の制御手段9は、制御変数(CV)に、R点~N点のいずれか1つ以上の点の排出流中の酸素濃度と炭化水素濃度の比率をとることができる。図示の例では、反応装置1からの排出流をR点で取り出して酸素濃度と炭化水素濃度の比率を測定し、測定結果の比率と予め設定されている比率の目標値とを比較して偏差

を検出し、その偏差量に応じて反応装置1への酸素供給流量に対する操作値を演算し、流量指示調整器5に送って変更を指示する。流量指示調整器5は、指示された操作値に基づいて反応装置1への酸素供給流量F2を変更する。

#### 【0025】

【発明の効果】本発明によれば、反応装置入口の合計流量を直接もしくは間接的に調整することにより、各分離装置への供給流量および各分離装置からの排出流量を所望値に保つことが可能となる。更に、反応装置出口の酸素濃度と炭化水素濃度の比を直接もしくは間接的に調整することにより、結果的に反応装置入口のガス組成を所望値に保つことが可能となる。これにより、反応装置内の反応を安定化させることが容易となり、反応転化率、主製品選択率が安定すると共に、製品や反応生成物の分離回収装置の運転の安定化も容易となることにより、リサイクルループを備えた気相酸化反応システム全体の安定運転が可能となる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の気相酸化反応システムの基本構成図である。

【図2】本発明の気相酸化反応システムの一実施例構成図である。

#### 【符号の説明】

- 1 反応装置
- 2-A~2-N 分離装置
- 3 リサイクルループ
- 4~7 流量指示調整器
- 8 第1の制御手段
- 9 第2の制御手段
- 10 制御装置

【図1】

